

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

IN RE APPLICATION OF: Masaharu KAWACHI et al.

GAU:

SERIAL NO: New Application

EXAMINER:

FILED: Herewith

FOR: METHOD OF MANUFACTURING SUPERCONDUCTING QUANTUM INTERFERENCE TYPE
MAGNETIC FLUXMETER

REQUEST FOR PRIORITY

COMMISSIONER FOR PATENTS
ALEXANDRIA, VIRGINIA 22313

SIR:

☒ Full benefit of the filing date of International PCT Application Number PCT/JP02/01278, filed February 15, 2002, is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §120.

☐ Full benefit of the filing date(s) of U.S. Provisional Application(s) is claimed pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119(e): Application No. Date Filed

☒ Applicants claim any right to priority from any earlier filed applications to which they may be entitled pursuant to the provisions of 35 U.S.C. §119, as noted below.

In the matter of the above-identified application for patent, notice is hereby given that the applicants claim as priority:

COUNTRY

APPLICATION NUMBER

MONTH/DAY/YEAR

Japan

2001-136454

May 7, 2001

Certified copy of the corresponding Convention Application(s)

☒ is submitted herewith

☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

☐ were filed in prior application Serial No. filed

☐ were submitted to the International Bureau in PCT Application Number

Receipt of the certified copies by the International Bureau in a timely manner under PCT Rule 17.1(a) has been acknowledged as evidenced by the attached PCT/IB/304.

☐ (A) Application Serial No.(s) were filed in prior application Serial No. filed ; and

☐ (B) Application Serial No.(s)

☐ are submitted herewith

☐ will be submitted prior to payment of the Final Fee

Respectfully Submitted,

OBLON, SPIVAK, McCLELLAND,
MAIER & NEUSTADT, P.C.

Customer Number

22850

Tel. (703) 413-3000

Fax. (703) 413-2220

(OSMMN 05/03)

I:\USER\YSTAN\OTHER-FILLER\PCT-BYPASS\244929\PRIORITY.DOC

Marvin J. Spivak

Registration No. 24,913

James D. Hamilton
Registration No. 28,421

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日 2001年 5月 7日
Date of Application:

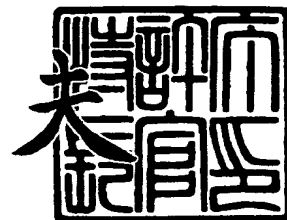
出願番号 特願2001-136454
Application Number:
[ST. 10/C]: [JP 2001-136454]

出願人 科学技術振興事業団
Applicant(s):

2003年 9月 9日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

今井 康



出証番号 出証特2003-3073939

【書類名】 特許願

【整理番号】 A000101479

【提出日】 平成13年 5月 7日

【あて先】 特許庁長官 殿

【国際特許分類】 G01R 33/035

【発明の名称】 量子干渉型磁束計の製造方法

【請求項の数】 6

【発明者】

【住所又は居所】 岩手県盛岡市三本柳 2 - 2 8 - 8 アップルコート D 2
0 2

【氏名】 河内 正治

【発明者】

【住所又は居所】 岩手県盛岡市高松 4 丁目 1 7 - 1 9 岩手大学高松宿舎
2 - 4 0 5

【氏名】 吉澤 正人

【発明者】

【住所又は居所】 岩手県盛岡市上田 4 丁目 1 4 - 1 9 ハイツ上田 3 0 2

【氏名】 佐藤 薫由

【特許出願人】

【識別番号】 396020800

【氏名又は名称】 科学技術振興事業団

【代理人】

【識別番号】 100058479

【弁理士】

【氏名又は名称】 鈴江 武彦

【電話番号】 03-3502-3181

【選任した代理人】

【識別番号】 100092196

【弁理士】

【氏名又は名称】 橋本 良郎

【選任した代理人】

【識別番号】 100091351

【弁理士】

【氏名又は名称】 河野 哲

【選任した代理人】

【識別番号】 100088683

【弁理士】

【氏名又は名称】 中村 誠

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 011567

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【プルーフの要否】 要

【書類名】 明細書

【発明の名称】 量子干渉型磁束計の製造方法

【特許請求の範囲】

【請求項 1】

第 1 の円筒形セラミック基材の外表面に導電性パターンを形成する工程、
前記導電性パターン上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を泳動電着させる工程、及び

前記第 1 の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、イン
プットコイルおよびこのインプットコイルと一体型のピックアップコイルを形成
する工程

を具備することを特徴とする量子干渉型磁束計の製造方法。

【請求項 2】

第 1 の円筒形セラミック基材の上部内表面に、導電性層を形成する工程、
前記導電性層上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微
粒子を泳動電着させる工程、及び

前記第 1 の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、第 1
の磁気シールド層を形成する工程

を更に具備することを特徴とする請求項 1 に記載の量子干渉型磁束計の製造方
法。

【請求項 3】

前記ピックアップコイルの外径よりも大きな内径を有する第 2 の円筒形セラミ
ック基材の外表面に導電性膜を形成する工程、

前記導電性膜上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微
粒子を泳動電着させる工程、及び

前記第 2 の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、第 2
の高温超伝導シールド層を形成する工程、

前記第 2 の円筒形セラミック基材の下端部内に前記ピックアップコイルの先端
部が挿入されるように配置する工程、および

前記第 2 の円筒形セラミック基材の上端部から高温超伝導量子干渉型素子を挿

入して、前記インプットコイルと前記高温超伝導量子干渉型素子を磁氣的に結合させる工程

を更に具備することを特徴とする請求項 1 または 2 に記載の量子干渉型磁束計の製造方法。

【請求項 4】

前記導電性パターン、導電性層および導電性膜は、セラミック基材の表面に導電性ペースト層を形成し、この導電性ペースト層を熱処理することにより形成されることを特徴とする請求項 1～3 のいずれかの項に記載の量子干渉型磁束計の製造方法。

【請求項 5】

前記導電性パターン、導電性層および導電性膜は、導電性物質のメッキ、または導電性物質の蒸着により形成されることを特徴とする請求項 1～4 のいずれかの項に記載の量子干渉型磁束計の製造方法。

【請求項 6】

前記導電性パターン、導電性層および導電性膜は、銀を主成分として含むことを特徴とする請求項 1～5 のいずれかの項に記載の量子干渉型磁束計の製造方法。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】

本発明は、量子干渉型磁束計、特に、高温超伝導薄膜を用いた量子干渉型磁束計の製造方法に関する。

【0002】

【従来の技術】

量子干渉型（以下、SQUIDと呼ぶ）磁束計は、地磁気の 5×10^{-6} 以下の磁場を検出することができる高感度の磁気センサである。超伝導の量子化現象を利用しており、従来の磁気センサよりも3桁以上の高感度を有している。特に、高温超伝導薄膜を用いたSQUID磁束計の開発により、液体窒素温度（77.3 K）での動作が可能となり、その応用分野は拡大しつつある。

【0003】

SQUID磁束計は、超伝導薄膜を微細加工して、弱い超伝導状態である接合部を図4に示すように並列に接続したデバイスである。SQUID磁束計にバイアス電流を流すと、図5に示すように、臨界電流値（ I_c ）までは超伝導状態であるため、SQUID磁束計の両端に発生する電圧はゼロである。しかし、臨界電流値を越えると、SQUID磁束計は常伝導状態に変化し、電圧が派生する。

【0004】

一方、SQUID磁束計に磁場を印加し、並列に接続された接合部分のループに磁束を入れると、臨界電流値が減少する。

【0005】

ここで、図6に示すように、バイアス電流を臨界電流値近傍に固定して、外部から磁場を印加すると、SQUID磁束計の両端に発生する電圧が変化する。この電圧変化を検出することにより、磁場の強さを測定することが可能である。

【0006】**【発明が解決しようとする課題】**

以上のような従来の高温超伝導薄膜を用いたSQUID磁束計では、そのピックアップコイルの作製が非常に困難であるという問題がある。即ち、高温超伝導材料は、成形、加工が困難であることから、同軸型ピックアップコイルの形状に仕上げる事が出来ないため、通常、平板型ピックアップコイルとして、薄膜デバイスであるSQUID素子と一体化して作製していた。

【0007】

即ち、高温超伝導材料を用いた同軸型ピックアップコイルは、これまで作製されていなかった。

このように、従来の高温超伝導材料を用いたSQUID磁束計のピックアップコイルは平板型であるため、磁気測定においては、SQUID素子に対して鉛直方向の磁気勾配に対する感受性はなかった。

【0008】

本発明は、このような事情の下になされ、SQUID素子に対し鉛直方向の磁気勾配に対する感受性を有する、同軸型ピックアップコイルを備えた量子干渉型

磁束計の製造方法を提供することを目的とする。

【0009】

【課題を解決するための手段】

上記課題を解決するため、本発明は、第1の円筒形セラミック基材の外表面に導電性パターンを形成する工程、前記導電性パターン上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を泳動電着させる工程、及び前記第1の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、インプットコイルおよびこのインプットコイルと一体型のピックアップコイルを形成する工程を具備することを特徴とする量子干渉型磁束計の製造方法を提供する。

【0010】

本発明の量子干渉型磁束計の製造方法は、第1の円筒形セラミック基材の内表面に、導電性層を形成する工程、前記導電性層上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を泳動電着させる工程、及び前記第1の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、第1の磁気シールド層を形成する工程を更に具備するものとして行うことができる。

【0011】

また、前記ピックアップコイルの外径よりも大きな内径を有する第2の円筒形セラミック基材の外表面に導電性膜を形成する工程、前記導電性膜上に、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を泳動電着させる工程、及び前記第2の円筒形セラミック基材を熱処理して、前記微粒子を焼結させ、第2の高温超伝導シールド層を形成する工程、前記第2の円筒形セラミック基材の下端部内に前記ピックアップコイルの先端部が挿入されるように配置する工程、および前記第2の円筒形セラミック基材の上端部から高温超伝導量子干渉型素子を挿入して、前記インプットコイルと前記高温超伝導量子干渉型素子を磁氣的に結合させる工程を更に具備するものとして行うことができる。

【0012】

以上の本発明の方法において、導電性パターン、導電性層および導電性膜は、セラミック基材の表面に導電性ペースト層を形成し、この導電性ペースト層を熱処理することにより形成することができる。或いはまた、導電性物質のメッキ、

または導電性物質の蒸着により形成することが出来る。

【0013】

なお、導電性パターン、導電性層および導電性膜は、銀を主成分として含むものとする事が出来る。

【0014】

以上のように構成される本発明の量子干渉型磁束計の製造方法によると、円筒形セラミック基材の外面に、インプットコイルと一体型の、同軸型ピックアップコイルを形成することが出来るため、高温超伝導量子干渉型素子に対し鉛直方向の磁気勾配に対しても高い感受性を付与することが出来る。

【0015】

また、ピックアップコイルのスケールアップが容易であるため、感度の向上を容易に行うことが可能である。

【0016】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について説明する。

本発明は、円筒形セラミック基材に泳動電着により高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を堆積することにより、インプットコイルおよびこのインプットコイルと一体型の同軸型ピックアップコイルを形成することを特徴とする。

【0017】

本発明に使用される円筒形セラミック基材としては、1000℃程度までの耐熱性を有すること、超伝導体に対して安定であること、比較的超伝導体の熱膨張係数に近いことなどの条件から、アルミナ(Al_2O_3)、酸化マグネシウム(MgO)、イットリウム安定化ジルコニア(YSZ)等を用いることが出来る。入手性の点で、これらの中では、アルミナを好ましく用いることが出来る。

【0018】

本発明に使用される高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子としては、特に限定されないが、例えば、 $YBa_2Cu_3O_7$ 粒子、 $YBa_2Cu_4O_8$ 粒子等を用いることが出来る。

【0019】

本発明において、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子は、泳動電着により堆積されるので、その下地は導電性でなければならない。そのため、円筒形セラミック基材表面に導電性材料を被着させる必要がある。導電性材料としては、超伝導体と反応しない金属として銀が好ましい。

【0020】

円筒形セラミック基材表面に導電性材料を被着させる方法としては、導電性ペーストを塗布し、熱処理する方法、導電性材料をめっきまたは蒸着により被着する方法等を挙げることが出来る。

銀ペーストとしては、904T、FSP-306T、MH-106D（商品名：田中貴金属社製）を挙げることが出来る。

【0021】

泳動電着は、高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子を分散させた溶媒中に円筒形セラミック基材を配置し、被着された導電性材料に対向させて陽極を配置し、導電性材料を陰極として用い、電極間に電圧を印加することにより行われる。溶媒としては、トルエン、アセトン等を用いることが出来る。溶媒中の微粒子の濃度は、通常、 $30\text{ mg} \sim 40\text{ mg} / \text{cm}^3$ であり、ヨウ素の濃度は、 $0.4\text{ mg} / \text{cm}^3$ である。

【0022】

泳動電着の条件は、通常用いられる条件を用いることが出来る。例えば、電圧40～500V、時間10～60秒である。なお、泳動電着は、磁場が泳動方向に対して平行に印加された状態で行うことが望ましい。

【0023】

泳動電着された高温超伝導微粒子および／または高温超伝導体前駆物質微粒子は、次いで熱処理され、焼結される。この熱処理により、高温超伝導体前駆物質微粒子は高温超伝導微粒子となる。熱処理温度は950～930℃、熱処理雰囲気は酸素であるのが好ましい。

【0024】

以上、インプットコイルおよびこのインプットコイルと一体型の同軸型ピックアップ

アップコイルを形成する工程について説明したが、本発明では、円筒形セラミック基材の内面に高温超伝導膜からなる磁気シールドを形成する工程、およびピックアップコイルよりも大きい内径を有する別の円筒形セラミック基材の外面に高温超伝導膜を形成して磁気シールド管を得る工程も、上述と同様のプロセスで行うことが可能である。

【0025】

以下、本発明の一実施例に係る量子干渉型磁束計の製造方法について、図面を参照して説明する。

【0026】

図1は、本発明の一実施例に係る方法により製造された量子干渉型磁束計のピックアップコイル部を取出して概略的に示す図である。また、図2は、図1に示すピックアップコイル部を備える量子干渉型磁束計を概略的に示す図である。

【0027】

まず、純度97%場のアルミナからなる、内径18mm、外形21mmの第1の円筒形セラミック基材1を準備した。この円筒形セラミック基材1の上部内表面および外表面に、スクリーン印刷により、それぞれ内表面銀ペースト膜および外表面銀ペーストパターンを0.05mmの膜厚に形成した。銀ペーストとしては、FSP-306T（田中貴金属社製）を用いた。

【0028】

次いで、この第1の円筒形セラミック基材1を600℃で1時間、大気中で熱処理した。この熱処理により、銀ペーストの揮発成分は蒸発し、銀成分が第1の円筒形セラミック基材1の内表面および外表面に固着した。その結果、膜厚0.05mmの内表面銀膜および外表面銀パターンが形成された。

【0029】

次に、内表面銀膜および外表面銀パターン上に、高温超伝導微粒子またはを泳動電着させた。高温超伝導微粒子としては、本実施例の場合、粒径3μm以下のYBa₂Cu₃O₇粒子を用いた。泳動電着は、次のようにして行った。

【0030】

即ち、アセトン500mリットル、ヨウ素200mリットル、およびYBa₂

Cu₃O₇15gを含む電着浴中に、円筒形セラミック基材1を配置した。陽極としてスパイラル状の白金線（0.5mm径）を円筒形セラミック基材1の外側に配置し、直線状の白金線（0.5mm径）を内側に配置した。なお、陰極としては、円筒形セラミック基材1の内表面および外表面に形成された内表面銀膜および外表面銀パターンを用いた。

【0031】

陽極および陰極間に500Vの電圧を20秒間印加することにより、円筒形セラミック基材1の内表面および外表面に形成された内表面銀膜および外表面銀パターン上に、高温超伝導微粒子を泳動電着させた。

【0032】

その後、第1の円筒形セラミック基材1を図3に示すような熱履歴で熱処理して、第1の高温超伝導微粒子を焼結した。熱処理雰囲気は、酸素であった。

【0033】

熱履歴は、図3に示すように、まず300℃まで昇温して1時間維持し、次いで500℃/hの昇温速度で800℃まで昇温し、次に100℃/hの昇温速度で930℃まで昇温し、そこで1時間維持した。降温は、まず60℃/hの降温速度で500℃まで降温し、そこで5時間維持し、次いで60℃/hの降温速度で常温まで冷却した。

【0034】

その結果、第1の円筒形セラミック基材1の外表面に、ピックアップコイル2およびインプットコイル3が形成され、内表面に第1の磁気シールド4が形成された。このようにして、インプットコイル3と一体型のピックアップコイル2からなる同軸型のピックアップコイル部5が得られた。

【0035】

次に、図2に示すように、ピックアップコイル部5の外径よりも大きな内径を有する第2の円筒形セラミック基材6の外表面全面に、銀ペーストを塗布した。銀ペーストとしては、上述と同様のものを用いた。

【0036】

次いで、第2の円筒形セラミック基材6を、600℃で1時間、大気中で熱処

理した。この熱処理により、銀ペーストの揮発成分は蒸発し、銀成分が外表面全面に固着し、銀層を形成した。

【0037】

その後、銀層上に、高温超伝導微粒子を泳動電着させた。高温超伝導微粒子および泳動電着の条件は、上述と同様であった。

【0038】

更に、第2の円筒形セラミック基材6を、上述と同様の熱履歴で熱処理して、高温超伝導微粒子を焼結することにより、外表面に第2の磁気シールド層が形成された磁気シールド管7が得られた。

【0039】

そして、磁気シールド管7の下端部内に上述のピックアップコイル部5の先端部が挿入されるように配置するとともに、磁気シールド管7の上端部から高温超伝導量子干渉型素子8を挿入して、ピックアップコイル部5のインプットコイル3と高温超伝導量子干渉型素子8を磁氣的に結合させて、量子干渉型磁束計が完成された。

【0040】

なお、ピックアップコイル部5の内面の第1の磁気シールド層3は、鉛直方向の磁気雑音を排除する役割を有する。

【0041】

以上のようにして、量子干渉型磁束計を、簡単な工程で、精度よく、低コストで製造することが出来た。

【0042】

以上説明した実施例では、円筒形セラミック基材に銀ペーストを塗布することにより導電性パターンまたは導電性層を形成したが、本発明はこれに限らず、メッキや蒸着により導電性物質を被着させてもよい。

【0043】

また、以上の実施例では、高温超伝導微粒子を泳動電着した例を示したが、本発明はこれに限らず、熱処理により高温超伝導微粒子となる、高温超伝導前駆物質微粒子を泳動電着させてもよい。或いはまた、高温超伝導微粒子と高温超伝導

前駆物質微粒子の混合物を泳動電着させることも可能である。

【0044】

【発明の効果】

以上、詳細に説明したように、本発明によると、円筒形セラミック基材の外面に、インプットコイルと一体型の、同軸型ピックアップコイルを形成することが出来るため、高温超伝導量子干渉型素子に対し鉛直方向の磁気勾配に対しても高い感受性が付与された量子干渉型磁束計を、容易に提供することが出来る。

【0045】

また、ピックアップコイルのスケールアップが容易であるため、感度の向上を容易に行うことが可能である。

【0046】

本発明の方法により製造された量子干渉型磁束計により、磁気による非破壊検査や生体測定の精度を向上させることが出来ることから、本発明は、極微磁気測定技術の進歩および用途拡大に対する貢献度が非常に高い。

【図面の簡単な説明】

【図1】

図1は、本発明の一実施例に係る方法により製造された量子干渉型磁束計のピックアップコイル部を取出して示す斜視図。

【図2】

図1に示すピックアップコイル部を備える量子干渉型磁束計を示す斜視図。

【図3】

泳動電着された高温超伝導微粒子の熱処理における熱履歴を示す図。

【図4】

SQUID磁束計の動作原理を説明するための図。

【図5】

SQUID磁束計の動作原理を説明するための図。

【図6】

SQUID磁束計の動作原理を説明するための図。

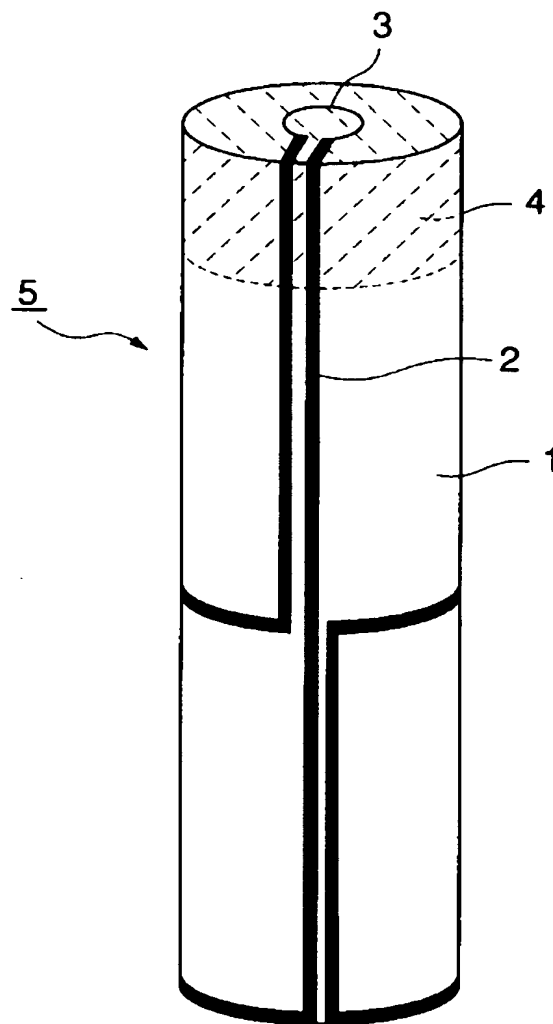
【符号の説明】

- 1…第 1 の円筒形セラミック基材
- 2…ピックアップコイル
- 3…インプットコイル
- 4…第 1 の磁気シールド層
- 5…同軸型ピックアップコイル部
- 6…第 2 の円筒形セラミック基材
- 7…磁気シールド管
- 8…S Q U I D 素子。

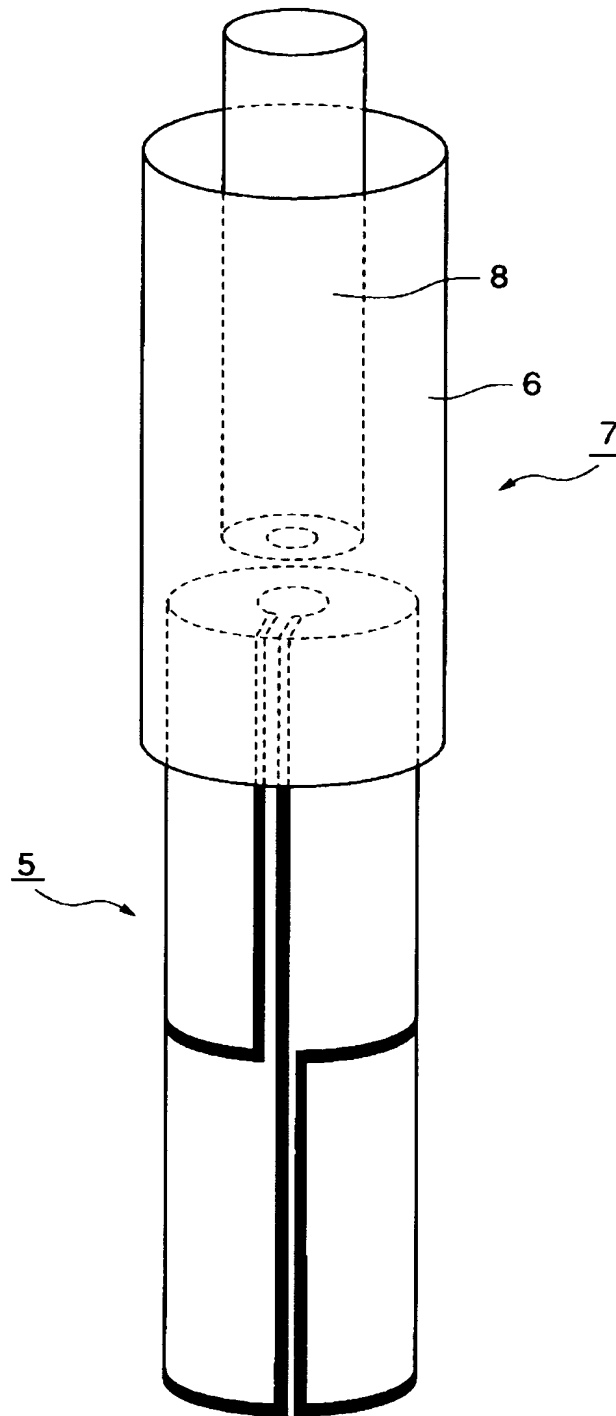
【書類名】

図面

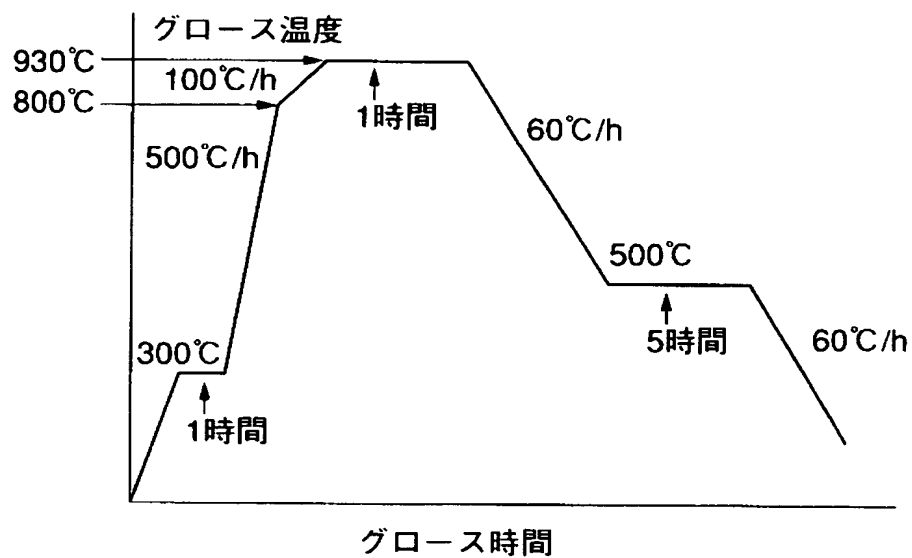
【図 1】



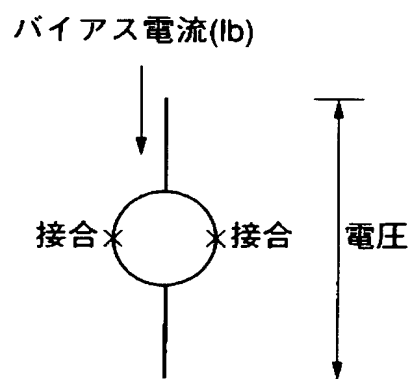
【図 2】



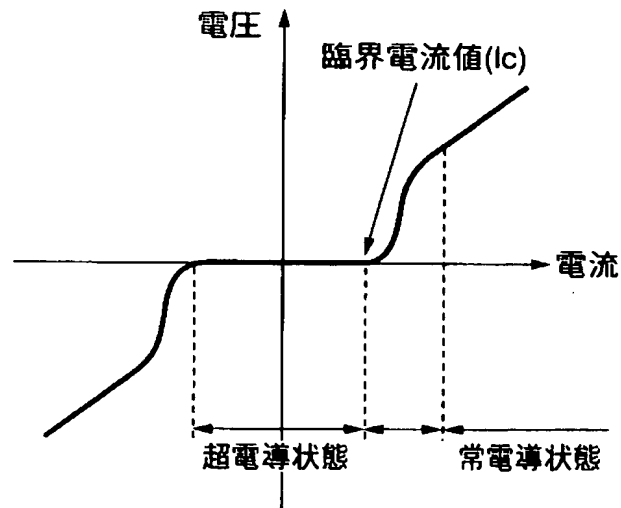
【図 3】



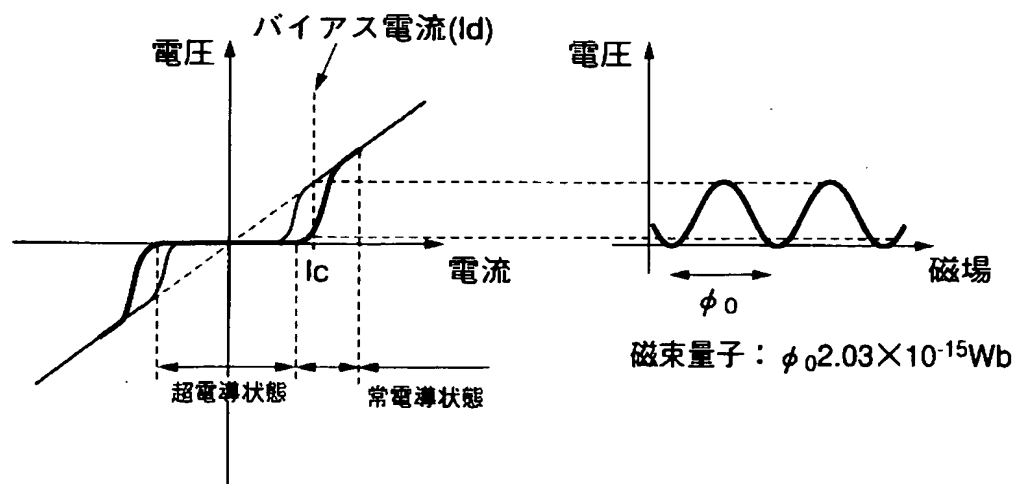
【図 4】



【図 5】



【図 6】



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 S Q U I D 素子に対し鉛直方向の磁気勾配に対する感受性を有する、同軸型ピックアップコイルを備えた量子干渉型磁束計の製造方法を提供すること。

【解決手段】 第 1 の円筒形セラミック基材の外表面への高温超伝導微粒子の泳動電着および焼結により、インプットコイルと一体型のピックアップコイル部を形成する工程、第 2 の円筒形セラミック基材の外表面全面への高温超伝導微粒子の泳動電着および焼結により、高温超伝導磁気シールド管を形成する工程、磁気シールド管の下端部内にピックアップコイル部の先端部が挿入されるように配置するとともに、磁気シールド管の上端部から高温超伝導量子干渉型素子を挿入して、インプットアップコイルと高温超伝導量子干渉型素子を磁氣的に結合させる工程を具備することを特徴とする。

【選択図】 図 2

特願 2 0 0 1 - 1 3 6 4 5 4

出 願 人 履 歷 情 報

識別番号

[3 9 6 0 2 0 8 0 0]

1. 変更年月日

1 9 9 8 年 2 月 2 4 日

[変更理由]

名称変更

住 所

埼玉県川口市本町 4 丁目 1 番 8 号

氏 名

科学技術振興事業団